

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

PCT/JI CC/07867

08.11.00

4
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1 9 9 9 年 1 2 月 2 8 日

REC'D 03 JAN 2001

出 願 番 号

Application Number:

平成 1 1 年 特 許 願 第 3 7 2 6 9 6 号

WIPO

PCT

出 願 人

Applicant (s):

ダイキン工業株式会社

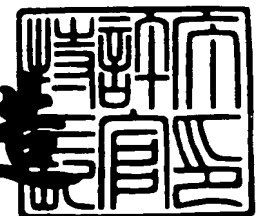
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 0 年 1 2 月 1 5 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出 証 番 号 出 証 特 2 0 0 0 - 3 1 0 3 5 9 8

【書類名】 特許願
 【整理番号】 SD991170
 【提出日】 平成11年12月28日
 【あて先】 特許庁長官 殿
 【国際特許分類】 C01B 3/38
 H01M 8/06

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府堺市金岡町 1 3 0 4 番地 ダイキン工業株式会
 社 堺製作所 金岡工場内
 【氏名】 松井 伸樹

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府堺市金岡町 1 3 0 4 番地 ダイキン工業株式会
 社 堺製作所 金岡工場内
 【氏名】 池上 周司

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府堺市金岡町 1 3 0 4 番地 ダイキン工業株式会
 社 堺製作所 金岡工場内
 【氏名】 岡本 康令

【特許出願人】

【識別番号】 000002853
 【氏名又は名称】 ダイキン工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100077931
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 前田 弘

【選任した代理人】

【識別番号】 100094134
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 小山 廣毅

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014409

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9702018

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 変成装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 改質反応部（6）で原料ガスから部分酸化を含む反応により生成された水素リッチな改質ガスを変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成するシフト反応部（10）を有する変成装置であって、

上記シフト反応部（10）は、上記改質反応部（6）からの改質ガスを直接に改質ガス通路（11）に導入して上記原料ガスと熱交換しながらシフト反応を行うように構成されていることを特徴とする変成装置。

【請求項 2】 請求項 1 の変成装置において、

シフト反応部（10）の変成触媒は、耐熱性を有する貴金属系の触媒であることを特徴とする変成装置。

【請求項 3】 請求項 2 の変成装置において、

シフト反応部（10）の変成触媒は、Pt 又は Pt，Ru の合金を活性金属として用いたものであることを特徴とする変成装置。

【請求項 4】 請求項 2 の変成装置において、

シフト反応部（10）の変成触媒は、多孔質材料に塗布又は担持されていることを特徴とする変成装置。

【請求項 5】 請求項 4 の変成装置において、

多孔質材料は、発泡金属、コージェライト又はセラミックスのいずれかであることを特徴とする変成装置。

【請求項 6】 請求項 1 の変成装置において、

シフト反応部（10）の周りに、改質反応部（6）に対し原料ガスを供給する原料ガス通路（3）が設けられていることを特徴とする変成装置。

【請求項 7】 請求項 6 の変成装置において、

シフト反応部（10）及び原料ガス通路（3）がハウジング（1）内に一体的に設けられていることを特徴とする変成装置。

【請求項 8】 請求項 6 の変成装置において、

シフト反応部（10）の反応熱及び顕熱を輻射により原料ガス通路（3）の原

料ガスと熱交換させる熱交換器（１５）が設けられていることを特徴とする変成装置。

【請求項 9】 請求項 8 の変成装置において、

シフト反応部（１０）の改質ガス通路（１１）は、改質ガスがシフト反応部（１０）の中心側から外周側に向かって流れるものとされていることを特徴とする変成装置。

【請求項 10】 請求項 9 の変成装置において、

シフト反応部（１０）における改質ガスの流れ方向下流側部分の原料ガス通路（３）との距離が上流側部分の原料ガス通路（３）との距離よりも大きいことを特徴とする変成装置。

【請求項 11】 請求項 8 の変成装置において、

熱交換器（１５）は、原料ガス通路（３）に臨む伝熱フィン（１６）を有することを特徴とする変成装置。

【請求項 12】 請求項 11 の変成装置において、

伝熱フィン（１６）は原料ガス通路（３）に沿って複数設けられており、上記複数の伝熱フィン（１６）のシフト反応部（１０）における改質ガスの流れ方向上流側のピッチが下流側よりも狭いことを特徴とする変成装置。

【請求項 13】 請求項 7 の変成装置において、

改質ガス通路（１１）に臨む改質ガス側伝熱フィン（２１）と、原料ガス通路（３）に臨む原料ガス側伝熱フィン（２２）とを有して、シフト反応部（１０）の反応熱及び顕熱を原料ガス通路（３）の原料ガスと熱交換させる熱交換器（２３）が設けられ、

シフト反応部（１０）の変成触媒が少なくとも上記改質ガス側伝熱フィン（２１）に塗布又は担持されていることを特徴とする変成装置。

【請求項 14】 請求項 7 の変成装置において、

改質反応部（６）、原料ガス通路（３）及びシフト反応部（１０）がハウジング（１）内に一体的に設けられていることを特徴とする変成装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、炭化水素系の原料ガスが部分酸化反応により改質されて生成される改質ガスを触媒による水性ガスシフト反応により変成するための変成装置に関する技術分野に属する。

【0002】

【従来の技術】

一般に、炭化水素やメタノールを改質して水素を生成することができ、このように改質によって水素を生成する燃料改質装置は、燃料電池や水素エンジン等に使用することができる。

【0003】

このような改質装置として、従来、例えば特開平 1 1 - 6 7 2 5 6 号公報に示されるように、燃料電池システムに組み込まれたものが知られている。この燃料改質装置は、部分酸化反応に対して活性を呈する触媒が充填された燃料改質器を備えており、この燃料改質器に原料ガスを導入して、その部分酸化反応により水素を有する改質ガスを発生させるようにしている。

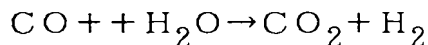
【0004】

また、以上のようにして生成された改質ガス中のCO（一酸化炭素）を低減させかつ水素収率を向上させるために、改質ガスを変成装置のシフト反応部において変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成することが行われている。

【0005】

すなわち、この水性ガスシフト反応においては、次式に示すように、一酸化炭素が水により酸化されて二酸化炭素と水素とに変化する。

【0006】



ところで、この種の変成装置は、シフト反応部の耐熱性が低く、改質反応部からの高温度（例えば 700℃）の改質ガスをその高温度のまま導入して反応させることができないことから、シフト反応部を高温シフト反応部と低温シフト反応部とに分けて、改質反応部の改質ガスを例えば 400℃に降温させた後に高温シフト反応部に導入させ、その高温シフト反応部から出た改質ガスをさらに例えば

200℃に降温させて低温シフト反応部に導入させるようにしている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、その場合、高温及び低温シフト反応部にそれぞれ流入する改質ガスの入口温度を制御する必要があり、そのための装置構成が複雑になるという問題があった。

【0008】

また、上記のように反応速度の速い高温条件下では反応を行わせることができないので、改質ガスを変成できる温度範囲が限定されてしまうのは避けられない。

【0009】

本発明は斯かる点に鑑みてなされたもので、その目的は、上記した変成装置の構造に工夫を凝らすことで、そのシフト反応部において改質反応部からの高温の改質ガスをそのままシフト反応できるようにし、変成装置をシンプルな構造とすることにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】

上記の目的を達成するために、この発明では、変成装置のシフト反応部において、改質反応部からの改質ガスを改質反応部への原料ガスと熱交換させながらシフト反応させるようにした。

【0011】

具体的には、請求項1の発明では、改質反応部（6）で原料ガスから部分酸化を含む反応により生成された水素リッチな改質ガスを変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成するシフト反応部（10）を有する変成装置として、上記シフト反応部（10）は、上記改質反応部（6）からの改質ガスを直接に改質ガス通路（11）に導入して上記原料ガスと熱交換しながらシフト反応を行うように構成されているものとする。

【0012】

このことで、改質反応部（6）からの高温の改質ガスが直接シフト反応部（1

0) に導入され、その改質ガスはシフト反応部 (10) において、改質反応部 (6) に供給される原料ガス通路 (3) 内の原料ガスと熱交換されながら水性ガスシフト反応により変成される。このため、改質反応部 (6) から出た改質ガスが高い温度のままで変成され、その改質ガスを反応速度の速い高温状態から反応速度は遅いが反応が平衡的に有利となる低温状態までの広い温度範囲で変成することができる。しかも、改質ガスの温度を制御することが要らなくなって、変成装置の構成をシンプルにすることができる。また、シフト反応部 (10) の変成触媒の充填量を低減することができる。

【0013】

請求項 2 の発明では、上記シフト反応部 (10) の変成触媒は、耐熱性を有する貴金属系の触媒とする。また、請求項 3 の発明では、シフト反応部 (10) の変成触媒は、Pt 又は Pt, Ru の合金を活性金属として用いたものとする。こうすると、上記高温でシフト反応を行うのに望ましい変成触媒が得られる。

【0014】

請求項 4 の発明では、シフト反応部 (10) の変成触媒は、多孔質材料に塗布又は担持されているものとする。この多孔質材料は表面積が大きいので、シフト反応部 (10) で変成触媒と改質ガスとの接触面積を増大させて反応速度を速めるとともに、熱の輻射効率を増大させることができる。

【0015】

請求項 5 の発明では、上記多孔質材料は、発泡金属、コーージェライト又はセラミックスのいずれかとする。このことで、望ましい多孔質材料が得られる。

【0016】

請求項 6 の発明では、上記シフト反応部 (10) の周りに、改質反応部 (6) に対し原料ガスを供給する原料ガス通路 (3) を設ける。このことで、シフト反応部 (10) 周りの原料ガス通路 (3) の原料ガスがシフト反応部 (10) での反応熱により加熱されることとなり、シフト反応部 (10) での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して、この自己熱回収により変成装置の熱効率を向上させることができる。

【0017】

その場合、請求項 7 の発明では、シフト反応部 (10) 及び原料ガス通路 (3) をハウジング (1) 内に一体的に設ける。このことで、変成装置の構造をシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

【0018】

請求項 8 の発明では、シフト反応部 (10) の反応熱及び顕熱を輻射により原料ガス通路 (3) の原料ガスと熱交換させる熱交換器 (15) を設ける。こうすると、シフト反応部 (10) と原料ガスとの間の熱交換速度が増大して伝熱効率を高めることができる。

【0019】

請求項 9 の発明では、請求項 8 の発明におけるシフト反応部 (10) の改質ガス通路 (11) は、改質ガスがシフト反応部 (10) の中心側から外周側に向かって流れるものとする。こうすれば、シフト反応部 (10) の入口部から出口部までの温度を異ならせて温度分布を形成することができる。

【0020】

その場合、請求項 10 の発明では、シフト反応部 (10) における改質ガスの流れ方向下流側部分の原料ガス通路 (3) との距離を上流側部分の原料ガス通路 (3) との距離よりも大きくする。この構成により、シフト反応部 (10) の輻射による原料ガス通路 (3) への熱交換量がシフト反応部 (10) における改質ガスの流れ方向上下流側部分で互いに異なるように変化し、シフト反応部 (10) の出口部分の温度を略一定に保持することができる。

【0021】

請求項 11 の発明では、請求項 8 の発明における熱交換器 (15) は、原料ガス通路 (3) に臨む伝熱フィン (16) を有するものとする。こうすると、伝熱効率をさらに向上させることができる。

【0022】

請求項 12 の発明では、上記伝熱フィン (16) を原料ガス通路 (3) に沿って複数設け、これら複数の伝熱フィン (16) のシフト反応部 (10) における改質ガスの流れ方向上流側のピッチを下流側よりも狭くする。このことで、シフト反応部 (10) と原料ガスとの間の熱交換をスムーズに行うことができる。

【0023】

請求項13の発明では、請求項7の発明において、改質ガス通路（11）に臨む改質ガス側伝熱フィン（21）と、原料ガス通路（3）に臨む原料ガス側伝熱フィン（22）とを有していて、シフト反応部（10）の反応熱及び顕熱を原料ガス通路（3）の原料ガスと熱交換させる熱交換器（23）を設ける。そして、シフト反応部（10）の変成触媒は少なくとも上記改質ガス側伝熱フィン（21）に塗布又は担持する。こうすれば、シフト反応部（10）の改質ガス通路（11）の改質ガスが、改質ガス通路（11）に臨む改質ガス側伝熱フィン（21）の変成触媒と接触してシフト反応する。この反応熱は、改質ガス側伝熱フィン（21）から原料ガス側伝熱フィン（22）を介して原料ガス通路（3）の原料ガスに伝達される。この場合でもシフト反応部（10）から原料ガスへの伝熱効率を高めることができる。

【0024】

請求項14の発明では、請求項7の発明における改質反応部（6）、原料ガス通路（3）及びシフト反応部（10）をハウジング（1）内に一体的に設ける。このことで、変成装置の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

【0025】

【発明の実施の形態】

（実施形態1）

図1及び図2は本発明の実施形態1に係る変成装置（A）を示し、（1）はその有底円筒状のハウジング（1）で、このハウジング（1）の内部には円筒状の隔壁（2）がハウジング（1）内を内側空間及び外側空間に区画するように配設され、この隔壁（2）はハウジング（1）と一体に形成されている。隔壁（2）においてハウジング（1）底部側（図1で上側）の端部は部分的に切り欠かれて上記内側及び外側空間同士が連通しており、この連通部と外側空間自体とが原料ガス通路（3）に構成されている。この原料ガス通路（3）において外側空間のハウジング（1）開口側（図1で下側）の端部は原料ガス入口（4）とされ、この原料ガス入口（4）は図外の原料ガス管に接続されており、この原料ガス管が

ら供給された原料ガス（都市ガス及び加湿空気を含む）を原料ガス入口（４）を経てハウジング（１）と隔壁（２）との間の原料ガス通路（３）に供給するようにしている。

【００２６】

上記隔壁（２）内の内側空間においてハウジング（１）底部側には、上記原料ガスを改質して原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質反応部（６）が設けられ、この改質反応部（６）のハウジング（１）底部側の入口部（６a）は上記ハウジング（１）底部に対応する原料ガス通路（３）に連通している。

【００２７】

上記改質反応部（６）は、詳しくは図示しないが、隔壁（２）内に装填されたハニカム構造を有するセラミックやアルミニウム等の円柱状モノリスからなり、このモノリスにおいてハウジング（１）の軸心方向（図１で上下方向）に貫通する多数の貫通孔がガス通路とされている。そして、モノリスにはPt、Rh、Ru等の貴金属系の触媒が担持されており、このモノリスのガス通路を通過する間に原料ガスが触媒により部分酸化反応して水素リッチな改質ガスに改質される。

【００２８】

尚、上記隔壁（２）内の内側空間において改質反応部（６）周りには耐火性の断熱材（７）が気密充填された状態で配置されており、この断熱材（７）により、改質反応部（６）と原料ガス通路（３）との間の熱移動量を制御するようにしている。

【００２９】

一方、隔壁（２）内の内側空間においてハウジング（１）開口側（図１で下側）の空間には、改質ガス中のCO濃度を低減しかつ水素の収量を高めるために、改質ガスを変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成するシフト反応部（１０）が設けられている。つまり、上記シフト反応部（１０）の周りに、改質反応部（６）に対し原料ガスを供給する原料ガス通路（３）が配設され、これらシフト反応部（１０）及び原料ガス通路（３）は上記改質反応部（６）と共にハウジング（１）内に一体的に設けられている。

【0030】

上記シフト反応部（10）は、上記改質反応部（6）の出口部（6b）からの改質ガスを直接に改質ガス通路（11）に導入して上記原料ガスと熱交換しながらシフト反応を行うように構成されている。具体的には、シフト反応部（10）は、発泡金属（発泡メタル）、コージェライト、セラミックスで構成された多孔質材料からなる触媒担体（12）を有し、この触媒担体（12）にシフト反応を行わせるための変成触媒が塗布又は担持されている。上記変成触媒は耐熱性を有する貴金属系の触媒で、具体的にはPt又はPt，Ruの合金を活性金属として用いたものである。

【0031】

上記触媒担体（12）はハウジング（1）底部側から開口側に向かって外径が次第に小さくなる円錐台形状のもので、その中心部には、ハウジング（1）の軸線方向に貫通して改質ガス通路（11）の一部を構成する中心孔（13）が開けられている。この中心孔（13）の改質反応部（6）と反対側の下流側端部は閉塞されており、改質反応部（6）の出口部（6b）からシフト反応部（10）に導入された改質ガスのお大半部が触媒担体（12）の中心孔（13）に流れ、その中心孔（13）から半径方向外側に向かって触媒担体（12）を通過して触媒担体（12）外周面と隔壁（2）との間の空間に流れる一方、残りの改質ガスは触媒担体（12）の上流側端面から直接触媒担体（12）内に入り、同様に半径方向外側に向かって触媒担体（12）外周面の空間に流れるようになっており、これらの改質ガスの流れに沿って上記改質ガス通路（11）が構成される。

【0032】

そして、上記の如き触媒担体（12）の円錐台形状により、シフト反応部（10）の触媒担体（12）外周面において、改質ガスの流れ方向下流側部分（図1下側部分）の原料ガス通路（3）との距離が、同上流側部分（図1上側部分）の原料ガス通路（3）との距離よりも大に設定されている。

【0033】

また、上記触媒担体（12）の外周面は、隔壁（2）周りの原料ガス通路（3）と対向するように配置されており、このことでシフト反応部（10）の反応熱

及び顕熱を輻射により原料ガス通路（３）の原料ガスと熱交換させる熱交換器（１５）が設けられている。この熱交換器（１５）は、隔壁（２）の外周面においてシフト反応部（１０）に対応する部分に上記原料ガス通路（３）に臨むように突設された複数の伝熱フィン（１６），（１６），…を有し、これらの伝熱フィン（１６），（１６），…は原料ガス通路（３）に沿って並んでいて、そのピッチは、シフト反応部（１０）における改質ガスの流れ方向上流側（図１上側）の方が下流側よりも狭くされている。

【００３４】

尚、上記シフト反応部（１０）におけるハウジング（１）開口側の端部は改質ガス出口（１８）とされ、この改質ガス出口（１８）は図外の改質ガス管を介して例えば燃料電池等に接続されている。また、図１及び図２において、（１９）はハウジング（１）の周りを断熱のために覆う断熱材である。

【００３５】

したがって、この実施形態においては、変成装置（Ａ）の定常運転時、原料ガス管から供給された原料ガス（都市ガス及び加湿空気を含む）が原料ガス入口（４）を経てハウジング（１）内に導入され、そのハウジング（１）と隔壁（２）との間の原料ガス通路（３）に供給される。この原料ガス通路（３）の原料ガスは熱交換器（１５）によりシフト反応部（１０）の反応熱及び顕熱を輻射により受けて所定温度に予熱される。このようにして改質ガスとの熱交換により予熱された原料ガスは原料ガス通路（３）をハウジング（１）底部側に流れ、その間に改質反応部（６）の反応熱が断熱材（７）及び隔壁（２）を経て原料ガスに伝達され、この伝熱により原料ガスがさらに加熱される。

【００３６】

上記原料ガス通路（３）を通過した原料ガスはハウジング（１）底部側の入口部（６ａ）から改質反応部（６）内に流入して、そのハニカム構造のモノリスにおけるガス通路で触媒と反応し、その部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスに改質される。また、上記改質反応部（６）での反応熱は、後続して原料ガス通路（３）を流れる原料ガスに断熱材（７）及び隔壁（２）を介して伝達される。

【0037】

上記改質反応部（6）で原料ガスから生成された高温の改質ガスは、改質反応部（6）の出口部（6b）からハウジング（1）開口側の隔壁（2）内のシフト反応部（10）に導入されてその触媒担体（12）を通過し、この触媒担体（12）を通過する間に、触媒担体（12）上の変成触媒により水性ガスシフト反応にされて、COが低減しかつ水素収率が高くなった改質ガスに変成される。そして、このシフト反応部（10）を出た改質ガスは、改質ガス出口（18）を介して改質ガス管に送り出され、その後燃料電池等に供給される。

【0038】

そのとき、上記シフト反応部（10）の反応熱及び顕熱を輻射により原料ガス通路（3）の原料ガスと熱交換させるように熱交換器（15）が設けられているので、シフト反応部（10）においては、改質ガスが原料ガス通路（3）内の原料ガスと熱交換して降温しながら変成される。このため、改質反応部（6）の出口部（6b）から出た高温の改質ガスがその高い温度のまま直接にシフト反応部（10）に導入されて変成されることとなる。それ故、改質ガスを反応速度の速い高温状態から反応速度が遅いが反応が平衡的に有利となる低温状態までの広い温度範囲で変成することができる。

【0039】

また、こうして改質反応部（6）からの改質ガスを直接シフト反応部（10）に導入して変成するので、その改質反応部（6）からの改質ガスの温度制御は不要となり、変成装置（A）の構成をシンプルにすることができるとともに、シフト反応部（10）の変成触媒の量を低減することができる。

【0040】

さらに、上記シフト反応部（10）の変成触媒は、Pt又はPt，Ruの合金が活性金属として用いられて耐熱性を有するので、上記高温でのシフト反応を良好に行うことができる。しかも、上記変成触媒は、発泡金属、コーゼライト又はセラミックスのいずれかからなる表面積の大きい多孔質材料に塗布又は担持されているので、シフト反応部（10）で変成触媒と改質ガスとの接触面積を増大させて反応速度を速めるとともに、熱の輻射効率を増大させることができる。

【 0 0 4 1 】

また、上記改質反応部（６）の出口部（６ｂ）からシフト反応部（１０）に導入された改質ガスは触媒担体（１２）の中心側から外周側に向かって流れる。つまり、その改質ガスの大半部が触媒担体（１２）の中心孔（１３）から半径方向外側に向かって触媒担体（１２）を通過して触媒担体（１２）外周面と隔壁（２）との間の空間に流れ、残りの改質ガスは触媒担体（１２）の上流側端面から直接触媒担体（１２）内に入って、同様に半径方向外側に向かって触媒担体（１２）外周面の空間に流れる。このことで、シフト反応部（１０）の入口部から出口部までの温度を異ならせて温度分布を形成することができる。

【 0 0 4 2 】

さらに、上記シフト反応部（１０）における触媒担体（１２）が円錐台形状に形成されて、その外周面の改質ガスの流れ方向下流側部分の原料ガス通路（３）との距離が同上流側部分の原料ガス通路（３）との距離よりも大きいので、上記シフト反応部（１０）の輻射による原料ガス通路（３）への熱交換量がシフト反応部（１０）における改質ガスの流れ方向上下流側部分で互いに異なるように変化し、シフト反応部（１０）の出口部の温度を略一定に保つことができる。

【 0 0 4 3 】

また、上記のように、シフト反応部（１０）周りの原料ガス通路（３）の原料ガスが、熱交換器（１５）によりシフト反応部（１０）の反応熱を伝達されて加熱されるので、シフト反応部（１０）での反応熱を原料ガスの予熱のために回収でき、この自己熱回収により変成装置（Ａ）の熱効率を向上させることができる。しかも、上記熱交換器（１５）は原料ガス通路（３）に臨む伝熱フィン（１６），（１６），…を有するので、シフト反応部（１０）と原料ガスとの間の熱交換速度が増大して伝熱効率を高めることができる。

【 0 0 4 4 】

また、上記熱交換器（１５）の伝熱フィン（１６），（１６），…は原料ガス通路（３）に沿って複数設けられていて、これら複数の伝熱フィン（１６），（１６），…のピッチが改質ガスの流れ方向上下流側で異なり、その上流側のピッチが下流側よりも狭いので、シフト反応部（１０）と原料ガス通路（３）の原料

ガスとの間の熱交換をスムーズに行うことができる。

【0045】

さらに、上記改質反応部（6）、原料ガス通路（3）及びシフト反応部（10）がハウジング（1）内に一体的に設けられているので、変成装置（A）の構造をシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

【0046】

（実施形態2）

図3及び図4は本発明の実施形態2を示し（尚、以下の各実施形態では図1及び図2と同じ部分については同じ符号を付してその詳細な説明は省略する）、シフト反応部（10）の構造を変えたものである。

【0047】

すなわち、この実施形態では、ハウジング（1）は有底角筒状のもので、そのハウジング（1）の内部には1対の対向する隔壁（2）、（2）がハウジング（1）内を1つの内側空間及び2つの外側空間に区画するように配設され、これら両隔壁（2）、（2）はハウジング（1）と一体に形成されている（図4参照）。上記各隔壁（2）においてハウジング（1）底部側（図3で上側）の端部は切り欠かれて上記内側及び外側空間同士が連通しており、この内側及び外側空間の間の連通部と両外側空間自体とが原料ガス通路（3）に構成されている。

【0048】

また、シフト反応部（10）には上記実施形態1の如き触媒担体（12）が設けられていない。その代わり、シフト反応部（10）に対応する部分の両隔壁（2）、（2）の内面間には両隔壁（2）、（2）間の改質ガス通路（11）（内部空間）に臨むようにハウジング（1）の中心線方向に延びる複数の改質ガス側伝熱フィン（21）、（21）、…が一体に掛け渡されている。

【0049】

一方、上記各隔壁（2）の外面には原料ガス通路（3）に臨むようにハウジング（1）の軸線方向に延びる複数の原料ガス側伝熱フィン（22）、（22）、…が突設されており、これら改質ガス側伝熱フィン（21）、（21）、…と原料ガス側伝熱フィン（22）、（22）、…とにより、改質ガス通路（11）内

の改質ガスと原料ガス通路（３）内の原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器（２３）が構成されている。

【００５０】

そして、上記改質ガス通路（１１）内に位置する、各改質ガス側伝熱フィン（２１）の表面、各隔壁（２）の内面及びハウジング（１）の内面にシフト反応部（１０）をなす変成触媒が塗布又は担持されている（この変成触媒の位置を図４において太い実線にて示している）。その他の構成は上記実施形態１と同様である。尚、上記変成触媒は、少なくとも各改質ガス側伝熱フィン（２１），（２１），…の表面に塗布又は担持されていればよい。

【００５１】

したがって、この実施形態の場合、改質反応部（６）の出口部（６ｂ）から出た高温の改質ガスがシフト反応部（１０）の改質ガス通路（１１）に供給されると、その改質ガスは改質ガス通路（１１）を流れる間に、改質ガス通路（１１）に臨む各改質ガス側伝熱フィン（２１）表面、隔壁（２）内面及びハウジング（１）内面の変成触媒と接触してシフト反応する。そして、この反応熱は、改質ガス側伝熱フィン（２１），（２１），…から原料ガス側伝熱フィン（２２），（２２），…を介して原料ガス通路（３）の原料ガスに伝達される。よって、この場合でも上記実施形態１と同様に作用効果が得られる。また、シフト反応部（１０）から原料ガスへの伝熱効率を高めることができる。

【００５２】

（実施形態３）

図５は実施形態３を示し、上記実施形態２の構成において、ハウジング（１）や隔壁（２）等の形状を変更したものである。すなわち、この実施形態では、上記実施形態１と同様に、ハウジング（１）及び隔壁（２）は互いに同心状に配置された円筒状のものとされている。

【００５３】

そして、熱交換器（２３）の原料ガス側伝熱フィン（２２），（２２），…は隔壁（２）の外周面に突設されている一方、改質ガス側伝熱フィン（２１），（２１），…は隔壁（２）内面に改質ガス通路（１１）を複数の部分に区画するよ

うに突設され、この各改質ガス側伝熱フィン（21）の表面ないし隔壁（2）の内面に変成触媒が担持又は塗布されている。従って、この実施形態においても上記実施形態2と同様の作用効果を奏することができる。

【0054】

尚、上記各実施形態では、原料ガス通路（3）、改質反応部（6）及びシフト反応部（10）をハウジング（1）内に一体的に設けているが、改質反応部（6）は別体にして、原料ガス通路（3）及びシフト反応部（10）のみをハウジング（1）内に一体的に設けるようにしてもよい。

【0055】

また、本発明は、上記実施形態の如き燃料電池システム以外に用いられる改質装置にも適用できるのはいうまでもない。

【0056】

【発明の効果】

以上説明したように、請求項1の発明によると、改質反応部で原料ガスから生成された改質ガスをシフト反応部で変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成する場合に、改質反応部からの改質ガスを直接にシフト反応部の改質ガス通路に導入して原料ガスと熱交換しながらシフト反応を行わせるようにしたことにより、改質反応部から出た改質ガスを反応速度の速い高温状態から反応が平衡的に有利となる低温状態までの広い温度範囲で変成して、変成温度範囲の拡大を図るとともに、改質ガスの温度制御を不要として変成装置の構成の簡略化を図ることができ、さらにはシフト反応部の変成触媒の充填量の低減を図ることができる。

【0057】

請求項2の発明では、シフト反応部の変成触媒は耐熱性を有する貴金属系の触媒とした。また、請求項3の発明では、同変成触媒は、Pt又はPt，Ruの合金を活性金属として用いたものとした。これらの発明によれば、上記高温でシフト反応を行うのに望ましい変成触媒が得られる。

【0058】

請求項4の発明では、上記シフト反応部の変成触媒は多孔質材料に塗布又は担持されているものとした。また、請求項5の発明では、多孔質材料は発泡金属、

コーゼライト又はセラミックスのいずれかとした。これら発明によると、シフト反応部で変成触媒と改質ガスとの接触面積を増大させて反応速度を速めるとともに、熱の輻射効率を増大させることができる。

【0059】

請求項6の発明によると、シフト反応部の周りに、改質反応部に対し原料ガスを供給する原料ガス通路を設けたことにより、シフト反応部での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して変成装置の熱効率の向上を図ることができる。

【0060】

請求項7の発明によると、上記シフト反応部及び原料ガス通路をハウジング内に一体的に設けたことにより、変成装置の構造をシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

【0061】

請求項8の発明によれば、シフト反応部の反応熱及び顕熱を輻射により原料ガス通路の原料ガスと熱交換させる熱交換器を設けたことにより、シフト反応部と原料ガスとの間の熱交換速度が増大して伝熱効率の向上を図ることができる。

【0062】

請求項9の発明によると、シフト反応部において改質ガスが中心側から外周側に向かって流れるようにしたことにより、シフト反応部の入口部から出口部までの温度を異ならせて温度分布を形成することができる。

【0063】

請求項10の発明によれば、シフト反応部における改質ガスの流れ方向下流側部分の原料ガス通路との距離を同上流側部分の距離よりも大きくしたことにより、シフト反応部の輻射による原料ガス通路への熱交換量を改質ガスの流れ方向上下流側部分で互いに異ならせて、シフト反応部の出口部分の温度を略一定に保持することができる。

【0064】

請求項11の発明によると、上記熱交換器は、原料ガス通路に臨む伝熱フィンを有するものとしたことにより、伝熱効率をさらに向上させることができる。

【0065】

請求項 1 2 の発明によると、上記伝熱フィン为原料ガス通路に沿って複数設け、その複数の伝熱フィンのシフト反応部における改質ガスの流れ方向上流側のピッチを下流側よりも狭くしたことにより、シフト反応部と原料ガスとの間の熱交換をスムーズに行うことができる。

【 0 0 6 6 】

請求項 1 3 の発明によると、改質ガス通路に臨む改質ガス側伝熱フィンと、原料ガス通路に臨む原料ガス側伝熱フィンとを有しかつシフト反応部の反応熱及び顕熱を原料ガス通路の原料ガスと熱交換させる熱交換器を設け、その少なくとも上記改質ガス側伝熱フィンにシフト反応部の変成触媒を設けたことにより、シフト反応部から原料ガスへの伝熱効率を高めることができる。

【 0 0 6 7 】

請求項 1 4 の発明によれば、上記改質反応部、原料ガス通路及びシフト反応部をハウジング内に一体的に設けたことにより、変成装置の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施形態 1 に係る変成装置を示す断面図である。

【図 2】

図 1 の II-II 線断面図である。

【図 3】

実施形態 2 を示す図 1 相当図である。

【図 4】

図 3 の IV-IV 線断面図である。

【図 5】

実施形態 3 を示す図 4 相当図である。

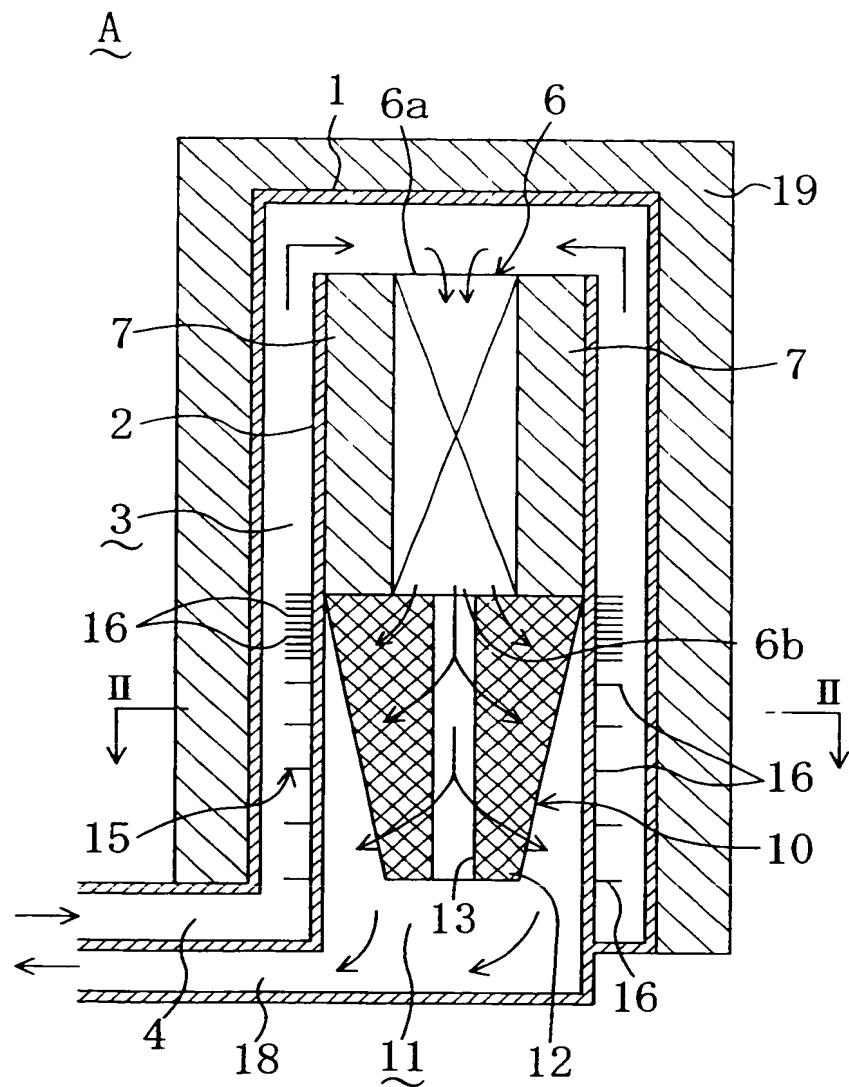
【符号の説明】

- (A) 変成
- (1) ハウジング
- (2) 隔壁

- (3) 原料ガス通路
- (6) 改質反応部
- (1 0) シフト反応部
- (1 1) 改質ガス通路
- (1 2) 触媒担体
- (1 5) 熱交換器
- (1 6) 伝熱フィン
- (2 1) 改質ガス側伝熱フィン
- (2 2) 原料ガス側伝熱フィン
- (2 3) 熱交換器

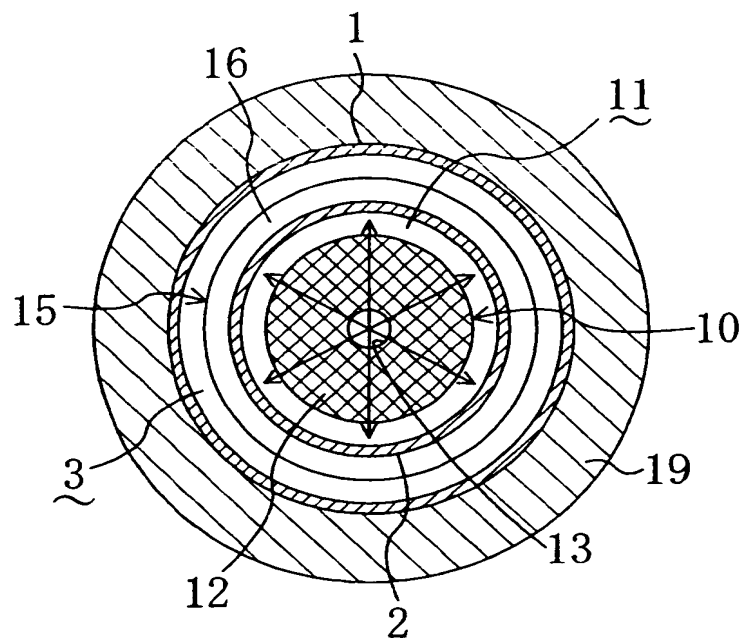
【書類名】 図面

【図 1】

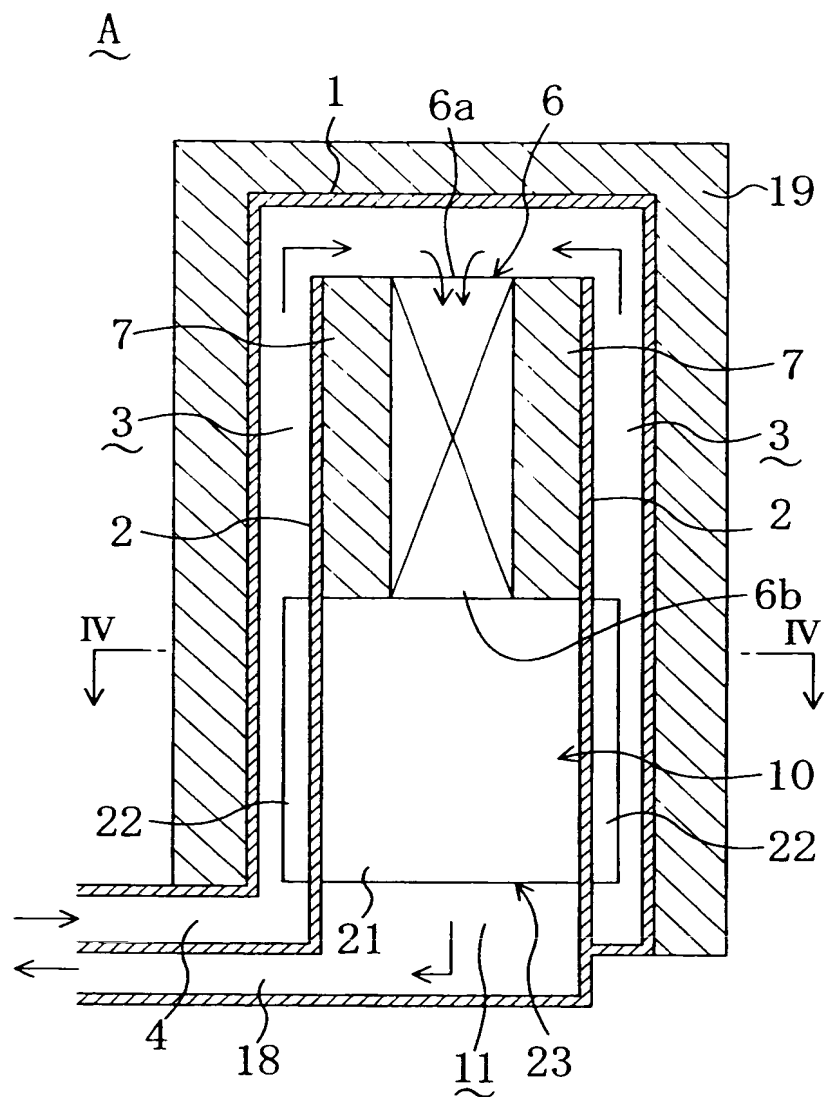


【図 2】

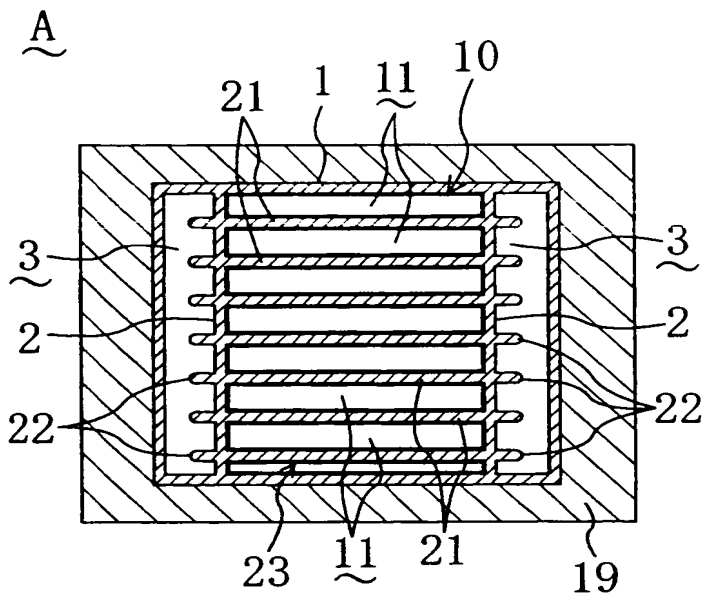
A



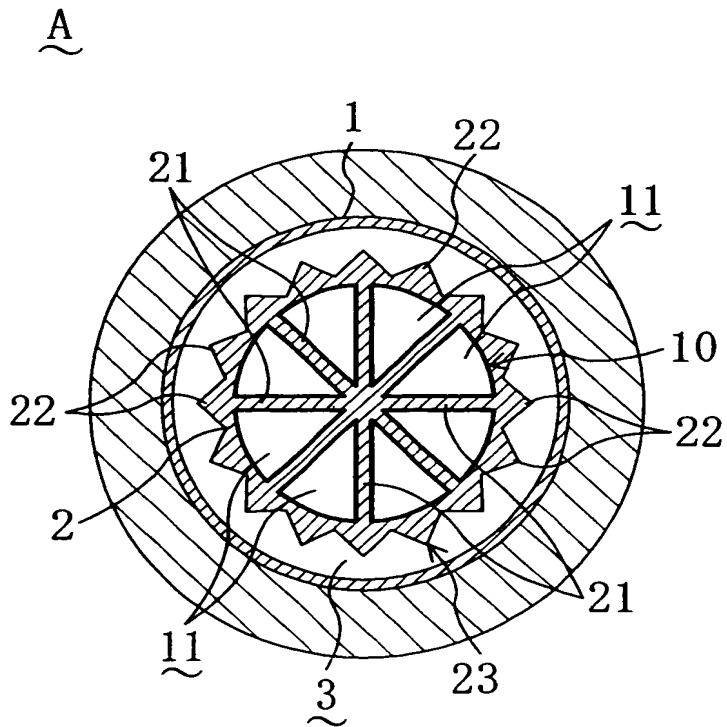
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質反応部（６）で原料ガスから部分酸化を含む反応により生成された水素リッチな改質ガス中のＣＯを低減しかつ水素収率を高めるために、その改質ガスをシフト反応部（１０）で変成触媒により水性ガスシフト反応させて変成する場合に、シフト反応部（１０）において改質反応部（６）からの高温の改質ガスをそのままシフト反応できるようにし、変成装置をシンプルな構造とする。

【解決手段】 改質反応部（６）からの改質ガスを直接にシフト反応部（１０）の改質ガス通路（１１）に導入して原料ガスと熱交換しながらシフト反応を行わせるようにする。改質反応部（６）から出た改質ガスを反応速度の速い高温状態から反応が平衡的に有利となる低温状態までの広い温度範囲で変成して、変成温度範囲の拡大を図るとともに、改質ガスの温度制御を不要として変成装置の構成の簡略化を図る。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002853]

1. 変更年月日 1990年 8月22日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル
氏 名 ダイキン工業株式会社

